

# VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS



## PCT

### INTERNATIONALER VORLÄUFIGER BERICHT ÜBER DIE PATENTIERBARKEIT

REC'D 09 DEC 2005

PCT

(Kapitel II des Vertrags über die internationale Zusammenarbeit auf dem Gebiet des Patentwesens)

Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts 0000054770		<b>WEITERES VORGEHEN</b> siehe Formblatt PCT/PEA/416	
Internationales Aktenzeichen PCT/EP2004/007861		Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr) 15.07.2004	Prioritätsdatum (Tag/Monat/Jahr) 01.08.2003
Internationale Patentklassifikation (IPK) oder nationale Klassifikation und IPK C07C209/64, C07C211/14			
Anmelder BASF AKTIENGESELLSCHAFT			
<p>1. Bei diesem Bericht handelt es sich um den internationalen vorläufigen Prüfungsbericht, der von der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde nach Artikel 35 erstellt wurde und dem Anmelder gemäß Artikel 36 übermittelt wird.</p> <p>2. Dieser BERICHT umfaßt insgesamt 4 Blätter einschließlich dieses Deckblatts.</p> <p>3. Außerdem liegen dem Bericht ANLAGEN bei; diese umfassen</p> <p>a. <input checked="" type="checkbox"/> (an den Anmelder und das Internationale Büro gesandt) insgesamt 4 Blätter; dabei handelt es sich um</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> Blätter mit der Beschreibung, Ansprüchen und/oder Zeichnungen, die geändert wurden und diesem Bericht zugrunde liegen, und/oder Blätter mit Berichtigungen, denen die Behörde zugestimmt hat (siehe Regel 70.16 und Abschnitt 607 der Verwaltungsvorschriften).</p> <p><input type="checkbox"/> Blätter, die frühere Blätter ersetzen, die aber aus den in Feld Nr. 1, Punkt 4 und im Zusatzfeld angegebenen Gründen nach Auffassung der Behörde eine Änderung enthalten, die über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung in der ursprünglich eingereichten Fassung hinausgeht.</p> <p>b. <input type="checkbox"/> (nur an das Internationale Büro gesandt) insgesamt (bitte Art und Anzahl der/des elektronischen Datenträger(s) angeben), der/die ein Sequenzprotokoll und/oder die dazugehörigen Tabellen enthält/enthalten, nur in computerlesbarer Form, wie im Zusatzfeld betreffend das Sequenzprotokoll angegeben (siehe Abschnitt 802 der Verwaltungsvorschriften).</p>			
<p>4. Dieser Bericht enthält Angaben zu folgenden Punkten:</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> Feld Nr. I Grundlage des Bescheids</p> <p><input type="checkbox"/> Feld Nr. II Priorität</p> <p><input type="checkbox"/> Feld Nr. III Keine Erstellung eines Gutachtens über Neuheit, erfinderische Tätigkeit und gewerbliche Anwendbarkeit</p> <p><input type="checkbox"/> Feld Nr. IV Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> Feld Nr. V Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> Feld Nr. VI Bestimmte angeführte Unterlagen</p> <p><input type="checkbox"/> Feld Nr. VII Bestimmte Mängel der internationalen Anmeldung</p> <p><input type="checkbox"/> Feld Nr. VIII Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung</p>			
Datum der Einreichung des Antrags 31.05.2005		Datum der Fertigstellung dieses Berichts 07.12.2005	
Name und Postanschrift der mit der internationalen Prüfung beauftragten Behörde  Europäisches Patentamt D-80298 München Tel. +49 89 2399 - 0 Tx: 523656 epmu d Fax: +49 89 2399 - 4465		Bevollmächtigter Bediensteter Kleidernigg, O Tel. +49 89 2399-2143 	

# INTERNATIONALER VORLÄUFIGER BERICHT ÜBER DIE PATENTIERBARKEIT

Internationales Aktenzeichen  
PCT/EP2004/007861

---

## Feld Nr. I Grundlage des Berichts

---

1. Hinsichtlich der **Sprache** beruht der Bericht auf der internationalen Anmeldung in der Sprache, in der sie eingereicht wurde, sofern unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist.
- ☐ Der Bericht beruht auf einer Übersetzung aus der Originalsprache in die folgende Sprache, bei der es sich um die Sprache der Übersetzung handelt, die für folgenden Zweck eingereicht worden ist:
- ☐ internationale Recherche (nach Regeln 12.3 und 23.1 b))
  - ☐ Veröffentlichung der internationalen Anmeldung (nach Regel 12.4)
  - ☐ internationale vorläufige Prüfung (nach Regeln 55.2 und/oder 55.3)
2. Hinsichtlich der **Bestandteile\*** der internationalen Anmeldung beruht der Bericht auf (*Ersatzblätter, die dem Anmeldeamt auf eine Aufforderung nach Artikel 14 hin vorgelegt wurden, gelten im Rahmen dieses Berichts als "ursprünglich eingereicht" und sind ihm nicht beigelegt*):

### Beschreibung, Seiten

1-12 in der ursprünglich eingereichten Fassung

### Ansprüche, Nr.

1-34 eingegangen am 31.05.2005 mit Telefax

### Zeichnungen, Blätter

1/2, 2/2 in der ursprünglich eingereichten Fassung

☐ einem Sequenzprotokoll und/oder etwaigen dazugehörigen Tabellen - siehe Zusatzfeld betreffend das Sequenzprotokoll

3. ☐ Aufgrund der Änderungen sind folgende Unterlagen fortgefallen:
- ☐ Beschreibung: Seite
  - ☐ Ansprüche: Nr.
  - ☐ Zeichnungen: Blatt/Abb.
  - ☐ Sequenzprotokoll (*genaue Angaben*):
  - ☐ etwaige zum Sequenzprotokoll gehörende Tabellen (*genaue Angaben*):
4. ☐ Dieser Bericht ist ohne Berücksichtigung (von einigen) der diesem Bericht beigelegten und nachstehend aufgelisteten Änderungen erstellt worden, da diese aus den im Zusatzfeld angegebenen Gründen nach Auffassung der Behörde über den Offenbarungsgehalt in der ursprünglich eingereichten Fassung hinausgehen (Regel 70.2 c)).
- ☐ Beschreibung: Seite
  - ☐ Ansprüche: Nr.
  - ☐ Zeichnungen: Blatt/Abb.
  - ☐ Sequenzprotokoll (*genaue Angaben*):
  - ☐ etwaige zum Sequenzprotokoll gehörende Tabellen (*genaue Angaben*):

\* Wenn Punkt 4 zutrifft, können einige oder alle dieser Blätter mit der Bemerkung "ersetzt" versehen werden.

# INTERNATIONALER VORLÄUFIGER BERICHT ÜBER DIE PATENTIERBARKEIT

Internationales Aktenzeichen  
PCT/EP2004/007861

---

## Feld Nr. V Begründete Feststellung nach Artikel 35 (2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung

---

1. Feststellung  
Neuheit (N) Ja: Ansprüche 1-34  
Nein: Ansprüche  
Erfinderische Tätigkeit (IS) Ja: Ansprüche 1-34  
Nein: Ansprüche  
Gewerbliche Anwendbarkeit (IA) Ja: Ansprüche: 1-34  
Nein: Ansprüche:

2. Unterlagen und Erklärungen (Regel 70.7):

**siehe Beiblatt**

---

## Feld Nr. VI Bestimmte angeführte Unterlagen

---

1. Bestimmte veröffentlichte Unterlagen (Regel 70.10)  
und / oder  
2. Nicht-schriftliche Offenbarungen (Regel 70.9)

**siehe Beiblatt**

**Zu Punkt V.**

Im vorliegenden Bescheid wird auf folgende Dokumente verwiesen:

D1 : US 5 202 490 A (BURGESS LLOYD M ET AL) 13. April 1993 (1993-04-13)

D2 : EP 0 952 152 A (AIR PROD & CHEM) 27. Oktober 1999 (1999-10-27)

Die vorliegende Anmeldung betrifft ein Verfahren zur Herstellung von Ethylenaminen durch kontinuierliche Umsetzung von Ethylendiamin (EDA) in Gegenwart eines Heterogenkatalysators, dadurch gekennzeichnet, daß man die Umsetzung in einer Reaktionskolonne mittels Reaktivdestillation durchführt.

D1 (vgl. im ISR zitierte Passagen) stellt den nächstliegenden Stand der Technik dar und offenbart ein Verfahren zur Herstellung von Ethylenaminen, unter anderem auch Diethylentriamin (DETA) durch Reaktion von EDA,  $H_2$  und  $NH_3$  in einem röhrenförmigen Festbettreaktor, der einen heterogenen Nickel-Rhenium Katalysator enthält und dessen Reaktionszone bei einer Temperatur von  $120^\circ$  bis  $300^\circ C$  betrieben wird. D1 unterscheidet sich vom Gegenstand des Anspruchs 1 dadurch, daß die Reaktion nicht als Reaktivdestillation ausgeführt ist.

Als technisches Problem wird die Bereitstellung eines weiteren Verfahrens zur Herstellung von Ethylenaminen angesehen. Die Lösung ist in Anspruch 1 dargelegt und betrifft die Reaktionsführung in Form einer Reaktivdestillation. Diese Lösung ist für den Fachmann ausgehend vom nächstliegenden Stand der Technik von D1 nicht naheliegend und hat den Vorteil, daß durch das kontinuierliche Abziehen der Reaktionsprodukte Folgeprodukte vermieden werden können.

**Zu Punkt VI.**

D1: EP-A-1 431 273

## Patentansprüche

1. Verfahren zur Herstellung von Ethylenaminen durch kontinuierliche Umsetzung von Ethylendiamin (EDA) in Gegenwart eines Heterogenkatalysators, dadurch gekennzeichnet, dass man die Umsetzung in einer Reaktionskolonne mittels Reaktivdestillation durchführt.
2. Verfahren zur Herstellung von Ethylenaminen nach Anspruch 1, wobei es sich bei den Ethylenaminen um Diethylentriamin (DETA), Piperazin (PIP) und/oder Triethylentetramin (TETA) handelt.
3. Verfahren nach den Ansprüchen 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, dass der Absolutdruck in der Kolonne im Bereich von  $> 0$  bis 20 bar liegt.
4. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass die Temperatur in dem Bereich der Kolonne, in dem die Umsetzung von EDA zu Ethylenaminen stattfindet (Reaktionszone), im Bereich von 100 bis 200 °C liegt.
5. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass die Zahl der theoretischen Trennstufen in der Kolonne insgesamt im Bereich von 5 bis 100 liegt.
6. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass die Zahl der theoretischen Trennstufen in der Reaktionszone im Bereich von 1 bis 30 liegt.
7. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass die Zahl der theoretischen Trennstufen im Verstärkungsteil oberhalb der Reaktionszone im Bereich von 0 bis 30 liegt.
8. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass die Zahl der theoretischen Trennstufen im Abtriebsteil unterhalb der Reaktionszone im Bereich von 0 bis 40 liegt.
9. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass in der Reaktionszone als Katalysator ein Katalysator enthaltend Ni, Co, Cu, Ru, Re, Rh, Pd und/oder Pt oder ein formselektiver Zeolithkatalystor oder ein Phosphatkatalysator eingesetzt wird.

## 14

10. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass in der Reaktionszone als Katalysator ein Katalysator enthaltend Pd und Zirkoniumdioxid als Trägermaterial eingesetzt wird.
- 5 11. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass der Katalysator als Schüttung in die Reaktionskolonne eingebracht ist.
12. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass der Katalysator als Schüttung in eine Destillationspackung eingebracht ist.
- 10 13. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 10, dadurch gekennzeichnet, dass der Katalysator als Beschichtung auf einer Destillationspackung vorliegt.
- 15 14. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 10, dadurch gekennzeichnet, dass der Katalysator in einem außerhalb der Kolonne befindlichen Verweilzeitbehälter vorliegt.
- 20 15. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass die Zugabe von EDA in die Kolonne in flüssiger Form unterhalb der Reaktionszone erfolgt.
- 25 16. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 14, dadurch gekennzeichnet, dass die Zugabe von EDA in die Kolonne gasförmig unterhalb der Reaktionszone erfolgt.
- 30 17. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 14, dadurch gekennzeichnet, dass die Zugabe von EDA in die Kolonne in flüssiger Form oberhalb der Reaktionszone erfolgt.
- 35 18. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass das EDA der Kolonne in einer Reinheit > 98 Gew.-% zugeführt wird.
19. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass das der Kolonne zugeführte EDA Piperazin (PIP) und/oder andere Ethylamine enthält.
- 40 20. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass die Umsetzung in Gegenwart von Wasserstoff durchgeführt wird.
21. Verfahren nach dem vorhergehenden Anspruch, dadurch gekennzeichnet, dass die Umsetzung in Gegenwart von 0,0001 bis 1 Gew.-% Wasserstoff bezogen auf die Feedmenge an EDA durchgeführt wird.